

TRANSLATION

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY REPORT ON PATENTABILITY

(Chapter II of the Patent Cooperation Treaty)

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference 0000055324	FOR FURTHER ACTION See Form PCT/IPEA/416	
International application No. PCT/EP2005/001017	International filing date (day/month/year) 02.02.2005	Priority date (day/month/year) 05.02.2004
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C07C201/08 C07C205/06		
Applicant BASF AKTIENGESELLSCHAFT		

1. This report is the international preliminary examination report, established by this International Preliminary Examining Authority under Article 35 and transmitted to the applicant according to Article 36.

2. This REPORT consists of a total of 7 sheets, including this cover sheet.

3. This report is also accompanied by ANNEXES, comprising:

a. ☒ (sent to the applicant and to the International Bureau) a total of 2 sheets, as follows:

☒ sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications authorized by this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions).

☐ sheets which supersede earlier sheets, but which this Authority considers contain an amendment that goes beyond the disclosure in the international application as filed, as indicated in item 4 of Box No. I and the Supplemental Box.

b. ☐ (sent to the International Bureau only) a total of (indicate type and number of electronic carrier(s)) _____, containing a sequence listing and/or tables related thereto, in computer readable form only, as indicated in the Supplemental Box Relating to Sequence Listing (see Section 802 of the Administrative Instructions).

4. This report contains indications relating to the following items:

☒ Box No. I Basis of the report

☐ Box No. II Priority

☒ Box No. III Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability

☐ Box No. IV Lack of unity of invention

☒ Box No. V Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

☐ Box No. VI Certain documents cited

☐ Box No. VII Certain defects in the international application

☐ Box No. VIII Certain observations on the international application

Date of submission of the demand	Date of completion of this report
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL PRELIMINARY REPORT ON PATENTABILITY

International application No.

PCT/EP2005/001017

Box No. I Basis of the report

1. With regard to the language, this report is based on the international application in the language in which it was filed, unless otherwise indicated under this item.
- ☐ This report is based on translations from the original language into the following language _____ which is the language of a translation furnished for the purposes of:
- ☐ international search (Rule 12.3 and 23.1(b))
- ☐ publication of the international application (Rule 12.4)
- ☐ international preliminary examination (Rule 55.2 and/or 55.3)
2. With regard to the elements of the international application, this report is based on *(replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report)*:
- ☐ the international application as originally filed/furnished
- ☒ the description:
- pages 1-11 _____ as originally filed/furnished
- pages* _____ received by this Authority on _____
- pages* _____ received by this Authority on _____
- ☒ the claims:
- nos. _____ as originally filed/furnished
- nos.* _____ as amended (together with any statement) under Article 19
- nos.* 1-14 _____ received by this Authority on 29.11.2005 with letter
- nos.* _____ received by this Authority on of 28.11.2005
- ☒ the drawings:
- sheets 1/2, 2/2 _____ as originally filed/furnished
- sheets* _____ received by this Authority on _____
- sheets* _____ received by this Authority on _____
- ☐ a sequence listing and/or any related table(s) – see Supplemental Box Relating to Sequence Listing.
3. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:
- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/figs _____
- ☐ the sequence listing (specify): _____
- ☐ any table(s) related to sequence listing (specify): _____
4. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments annexed to this report and listed below had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).
- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/figs _____
- ☐ the sequence listing (specify): _____
- ☐ any table(s) related to sequence listing (specify): _____

* If item 4 applies, some or all of those sheets may be marked "superseded."

INTERNATIONAL PRELIMINARY REPORT ON PATENTABILITY

International application No.

PCT/EP2005/001017

Box No. III Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability

The questions whether the claimed invention appears to be novel, to involve an inventive step (to be non obvious), or to be industrially applicable have not been examined in respect of:

☐ the entire international application☒ claims Nos. 1 (part)

because:

☐ the said international application, or the said claims Nos. _____
relate to the following subject matter which does not require an international preliminary examination (*specify*):☒ the description, claims or drawings (*indicate particular elements below*) or said claims Nos. 1 (part)
are so unclear that no meaningful opinion could be formed (*specify*):**See supplemental sheet**☐ the claims, or said claims Nos. _____ are so inadequately supported
by the description that no meaningful opinion could be formed.☐ no international search report has been established for said claims Nos. _____☐ the nucleotide and/or amino acid sequence listing does not comply with the standard provided for in Annex C of the Administrative Instructions in that:

the written form

☐ has not been furnished☐ does not comply with the standard

the computer readable form

☐ has not been furnished☐ does not comply with the standard☐ the tables related to the nucleotide and/or amino acid sequence listing, if in computer readable form only, do not comply with the technical requirements provided for in Annex C-bis of the Administrative Instructions.☐ See Supplemental Box for further details.

INTERNATIONAL PRELIMINARY REPORT ON PATENTABILITY

International application No.

PCT/EP2005/001017

Box No. V Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**1. Statement**

Novelty (N)	Claims	<u>2, 7, 12-14</u>	YES
	Claims	<u>1, 3-6, 8-11</u>	NO
Inventive step (IS)	Claims	<u>2</u>	YES
	Claims	<u>7, 12-14</u>	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	<u>1-14</u>	YES
	Claims	<u></u>	NO

2. Citations and explanations (Rule 70.7)**D1** US 4 663 490**D2** US 5 679 873**D3** , US 4 367 347**D4** US 6 583 327**D1** to **D3** are cited in the application.

The present application relates to a method for producing dinitrotoluene (DNT): a) reacting toluene with nitric acid in the presence of sulphuric acid to give mononitrotoluene; b) separating the reaction product of a) into a mononitrotoluene-containing organic phase and a sulphuric acid-containing aqueous phase; c) reacting the mononitrotoluene-containing organic phase with nitric acid in the presence of sulphuric acid to give dinitrotoluene and d) separating the reaction product of c) into a dinitrotoluene-containing organic phase and a sulphuric acid-containing aqueous phase.

1. Amendments - PCT Article 34(2) (b)

Claim 1 was amended as follows: incorporation of the original claim 3; correction of the toluene content in

Box No. V Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

the organic phase (page 7, line 5); incorporation of the feature "in countercurrent" (page 1, line 7). The toluene content in claim 2 was based on the weight of the organic phase (page 7, lines 5-6). The amendments satisfy the criteria of PCT Article 34(2)(b).

2. Novelty - PCT Article 33(2)

D1 and **D2** describe isothermal methods for producing DNT by nitrating toluene with nitric acid in the presence of sulphuric acid in the four steps a)-d) which require in total only two reaction apparatuses for the two steps a) and c). In **D1**, only a content of 0.03% nitric acid based on the aqueous phase is mentioned (example 1).

D3 also discloses a two-step method of nitrating toluene having separation steps c) and d), in which, after the mononitration, the toluene content of **0.5% by weight** based on the organic phase, and the nitric acid content of 0.1 - 1.0% by weight based on the aqueous phase are specified (column 5, lines 43-45 and 51-53). In the present application, the toluene content is from **0.5 to 8% by weight** based on the organic phase. **This means that in both methods, from D3 and the present application, after the mononitration, the possible toluene content is 0.5% by weight based on the organic phase.** The phase separation is carried out by a dynamic separator in the present application. In the description only one separator is mentioned by way of example. The phase separation in **D3** is performed by decanting, which can also fall under "dynamic separator" ("separator 55" ... "organic phase 56 and the spent aqueous acid phase 57 ...

Box No. V

Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability;
citations and explanations supporting such statement

are gravity separated"; figure 2 and column 5, lines 39-42). This means that the method of **D3** contains all essential features of the claimed methods.

D4 describes a method for producing mononitrotoluene (MNT) in which the crude MNT contains less than 10% by weight of toluene and traces of nitric acid (column 3, lines 13-19; examples).

The subject matter of claims 1, 3-6, 8-11, compared with **D3**, does not meet the requirement of PCT Article 33(2).

3. Inventive step - PCT Article 33(3)

D3 can be considered to be the closest prior art. The problem addressed by the invention is to simplify the method for producing DNT, in particular to reduce the number of reactors used and to diminish the reaction volume. The solution provides a method in which the reaction mixture at the end of step a) is characterized by a **toluene content of 3.5 to 5% by weight based on the organic phase**, a nitric acid content of 0.1 - 1.2% by weight based on the aqueous phase and the phase separation in step b) by means of a dynamic separator (claim 2).

In order to carry out a controlled nitration, generally in the prior art attempts are made to minimize the toluene content at the MNT stage (see description on page 4, lines 26-38 and **D3**: 0.5% by weight). The claimed residual toluene content at the timepoint of phase separation in the MNT is from 3.5 to 5% by weight, step

INTERNATIONAL PRELIMINARY REPORT ON PATENTABILITY

International application No.

PCT/EP2005/001017

Box No. V

Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability;
citations and explanations supporting such statement

b), higher than in **D3**. It has been proved by comparative examples that the DNT production methods having a lower number of reactors lead to a DNT in accordance with specifications despite the increased residual toluene content in the MNT, without undefined operating states occurring, with corresponding safety risks (see table 1; page 10, lines 18-32). There is no indication in **D1**, **D2** and/or **D4** which, in combination with **D3**, could lead to the proposed solution. The subject matter of claim 2 involves an inventive step.

Dependent claims 7 and 12-14 concern a minor structural modification of steps b), c) or d) according to claim 1 of the kind that a person skilled in the art routinely makes on the basis of familiar considerations, especially since the resulting advantages are readily foreseeable. Therefore, the subject matter of claims 7 and 12-14 does not involve an inventive step either.

Supplemental Box

In case the space in any of the preceding boxes is not sufficient.

Continuation of: **Box III**

Essential features: The phase separation in step b) is carried out in **D3** by decanting (column 5, lines 40-42). The single distinguishing feature in the application is phase separation in step b) by means of dynamic separators. Only one separator is mentioned as the sole example in the description. A person skilled in the art can certainly consider a decanter as a separator, so that it is not possible to acknowledge novelty (see above). In addition, the unclear wording "dynamic separator" in combination with the single distinguishing feature does not satisfy the criterion of clarity (PCT Article 6).

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS


PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

(Kapitel II des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens)

REC'D 20 APR 2005

Wing PCT

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 0000055324	WEITERES VORGEHEN siehe Formblatt PCT/PEA/416	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP2005/001017	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 02.02.2005	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 05.02.2004
Internationale Patentklassifikation (IPC) oder nationale Klassifikation und IPC INV. C07C201/08 C07C205/06		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al.		
<p>1. Bei diesem Bericht handelt es sich um den internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, der von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde nach Artikel 35 erstellt wurde und dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt wird.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 7 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p>3. Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; diese umfassen</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> (an den Anmelder und das Internationale Büro gesandt) insgesamt 2 Blätter; dabei handelt es sich um</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Blätter mit der Beschreibung, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit Berichtigungen, denen die Behörde zugestimmt hat (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsvorschriften).</p> <p><input type="checkbox"/> Blätter, die frühere Blätter ersetzen, die aber aus den in Feld Nr. 1, Punkt 4 und im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde eine Änderung enthalten, die über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgeht.</p> <p>b. <input type="checkbox"/> (nur an das Internationale Büro gesandt) insgesamt (bitte Art und Anzahl der/des elektronischen Datenträger(s) angeben), der/die ein Sequenzprotokoll und/oder die dazugehörigen Tabellen enthält/enhalten, nur in elektronischer Form, wie im Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll angegeben (siehe Abschnitt 802 der Verwaltungsvorschriften).</p>		
<p>4. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. I Grundlage des Berichts</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. II Priorität</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. III Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. IV Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VI Bestimmte angeführte Unterlagen</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung</p>		
Datum der Einreichung des Antrags 29.11.2005	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 18.04.2006	
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Seelmann, M Tel. +49 89 2399-8335	



Feld Nr. I Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Sprache** beruht der Bericht auf der internationalen Anmeldung in der Sprache, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.
- ☐ Der Bericht beruht auf einer Übersetzung aus der Originalsprache in die folgende Sprache, bei der es sich um die Sprache der Übersetzung handelt, die für folgenden Zweck eingereicht worden ist:
- ☐ internationale Recherche (nach Regeln 12.3 und 23.1 b))
 - ☐ Veröffentlichung der internationalen Anmeldung (nach Regel 12.4)
 - ☐ internationale vorläufige Prüfung (nach Regeln 55.2 und/oder 55.3)
2. Hinsichtlich der **Bestandteile*** der internationalen Anmeldung beruht der Bericht auf *(Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt)*:

Beschreibung, Seiten

1-11 in der ursprünglich eingereichten Fassung

Ansprüche, Nr.

1-14 eingegangen am 29.11.2005 mit Schreiben vom 28.11.2005

Zeichnungen, Blätter

1/2, 2/2 in der ursprünglich eingereichten Fassung

☐ einem Sequenzprotokoll und/oder etwaigen dazugehörigen Tabellen - siehe Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll

3. ☐ Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:
- ☐ Beschreibung: Seite
 - ☐ Ansprüche: Nr.
 - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
 - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
 - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):
4. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der diesem Bericht beigelegten und nachstehend aufgelisteten Änderungen erstellt worden, da diese aus den im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2 c)).
- ☐ Beschreibung: Seite
 - ☐ Ansprüche: Nr.
 - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
 - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
 - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):

* Wenn Punkt 4 zutrifft, können einige oder alle dieser Blätter mit der Bemerkung "ersetzt" versehen werden.

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT
ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT**

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2005/001017

Feld-Nr. III Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit

1. Folgende Teile der Anmeldung wurden nicht daraufhin geprüft, ob die beanspruchte Erfindung als neu, auf erfinderischer Tätigkeit beruhend (nicht offensichtlich) und gewerblich anwendbar anzusehen ist:

☐ die gesamte internationale Anmeldung,

☒ Ansprüche Nr. 1(part)

Begründung:

☐ Die gesamte internationale Anmeldung, bzw. die obengenannten Ansprüche Nr. beziehen sich auf den nachstehenden Gegenstand, für den keine internationale vorläufige Prüfung durchgeführt werden braucht (*genaue Angaben*):

☒ Die Beschreibung, die Ansprüche oder die Zeichnungen (*machen Sie bitte nachstehend genaue Angaben*) oder die obengenannten Ansprüche Nr. 1(part) sind so unklar, daß kein sinnvolles Gutachten erstellt werden konnte (*genaue Angaben*):

siehe Beiblatt

☐ Die Ansprüche bzw. die obengenannten Ansprüche Nr. sind so unzureichend durch die Beschreibung gestützt, daß kein sinnvolles Gutachten erstellt werden konnte.

☐ Für die obengenannten Ansprüche Nr. wurde kein internationaler Recherchenbericht erstellt.

☐ Das Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenzprotokoll entspricht nicht dem in Anhang C zu den Verwaltungsvorschriften vorgeschriebenen Standard, weil

die schriftliche Form

☐ nicht eingereicht wurde.

☐ nicht dem Standard entspricht.

die computerlesbare Form

☐ nicht eingereicht wurde.

☐ nicht dem Standard entspricht.

☐ Die Tabellen zum Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenzprotokoll, sofern sie nur in computerlesbarer Form vorliegen, entsprechen nicht den in Anhang C-bis zu den Verwaltungsvorschriften vorgeschriebenen technischen Anforderungen.

☐ siehe Beiblatt für weitere Angaben.

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2005/001017

Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35 (2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

- | | |
|--------------------------------|---|
| 1. Feststellung | |
| Neuheit (N) | Ja: Ansprüche 2,7,12-14
Nein: Ansprüche 1,3-6,8-11 |
| Erfinderische Tätigkeit (IS) | Ja: Ansprüche 2
Nein: Ansprüche 7,12-14 |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche 1-14
Nein: Ansprüche: |

2. Unterlagen und Erklärungen (Regel 70.7):

siehe Beiblatt

D1 US 4 663 490
D2 US 5 679 873
D3 US 4 367 347
D4 US 6 583 327

D1 bis D3 sind in der Anmeldung zitiert

Die vorliegende Anmeldung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Dinitrotoluol (DNT):
a) Umsetzung von Toluol mit Salpetersäure in Anwesenheit von Schwefelsäure zu Mononitrotoluol; b) Trennung des Reaktionsproduktes aus a) in eine Mononitrotoluol enthaltende organische Phase und eine Schwefelsäure enthaltende wäßrige Phase; c) Umsetzung der Mononitrotoluol enthaltenden organischen Phase mit Salpetersäure in Anwesenheit von Schwefelsäure zu Dinitrotoluol und d) Trennung des Reaktionsproduktes aus c) in eine Dinitrotoluol enthaltende organische Phase und eine Schwefelsäure enthaltende wäßrige Phase.

Punkt III

Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit

Wesentliche Merkmale: Die Phasentrennung in Schritt b) wird in D3 durch Dekantierung durchgeführt (Spalte 5, Zeilen 40-42). Das einzige unterschiedliche Merkmal in der Anmeldung ist eine Phasentrennung in Schritt b) mittels dynamischer Separatoren. Als einziges Beispiel wird nur ein Scheider in der Beschreibung erwähnt. Für den Fachmann kann sehr wohl ein Dekantierer als Scheider betrachtet werden, sodaß die Neuheit nicht anerkannt werden kann (siehe oben). Zusätzlich genügt die unklare Formulierung "dynamischer Separator" in Verbindung zu dem einzigen unterschiedlichen Merkmal nicht den Kriterien für Klarheit (Artikel 6 PCT).

Punkt V

Begründete Feststellung hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Änderungen - Art. 34(2)b) PCT

Der Anspruch 1 wurde wie folgt geändert: Aufnahme des ursprünglichen Anspruchs 3; Korrektur des Gehalts an Toluol in der organischen Phase (Seite 7, Zeile 5); Aufnahme das Merkmal "im Gegenstrom" (Seite 1, Zeile 7). Der Toluolgehalt wurde im Anspruch 2 auf das Gewicht der organischen Phase bezogen (Seite 7, Zeilen 5-6). Die Änderungen erfüllen die Kriterien von Artikel 34(2)b) PCT.

2. Neuheit - Art.33(2) PCT

D1 und **D2** beschreiben isotherme Verfahren zur Herstellung von DNT durch Nitrierung von Toluol mit Salpetersäure in Gegenwart von Schwefelsäure in den vier Stufe a)-d), die nur insgesamt zwei Reaktionsapparate für die zwei Stufen a) und c) benötigen. In **D1** wird nur ein Gehalt von 0.03% Salpetersäure bezogen auf die wässrige Phase erwähnt (Beispiel 1).

D3 offenbart auch ein zweistufiges Nitrierungsverfahren von Toluol mit Trennstufen c) und d), wobei nach der Mononitrierung der Gehalt an Toluol von 0.5 Gew.% bezogen auf die organische Phase und der Gehalt an Salpetersäure von 0.1 - 1.0 Gew.% bezogen auf die wässrige Phase angegeben werden. (Spalte 5, Zeilen 43-45 und 51-53). In der vorliegenden Anmeldung ist der Gehalt an Toluol von 0.5 bis 8 Gew.% bezogen auf die organische Phase. **Das heißt in den beiden Verfahren, aus D3 und der vorliegenden Anmeldung, ist nach der Mononitrierung der möglichen Gehalt an Toluol 0.5 Gew.% bezogen auf die organische Phase.** Die Phasentrennung wird durch einen dynamischen Separator in der vorliegenden Anmeldung durchgeführt. In der Beschreibung wird als Beispiel nur ein Scheider erwähnt. Die Phasentrennung in **D3** geschieht durch Dekantierung, was auch unten "dynamischer Separator" fallen kann ("separator 55"... "organic phase 56 and the spent aqueous acid phase 57...are gravity separated"; Abbildung 2 und Spalte 5, Zeilen 39-42). Das heißt, das Verfahren aus **D3** enthält alle wesentlichen Merkmalen der beanspruchten Verfahren.

D4 beschreibt ein Herstellungsverfahren von Mononitrotoluol (MNT), wobei das Roh-MNT weniger als 10 Gew% von Toluol und Spuren von Salpetersäure enthält (Spalte 3, Zeilen 13-19; Beispiele).

Der Gegenstand der Ansprüche 1, 3-6, 8-11 genügt gegenüber **D3** nicht dem Erfordernis des Artikels 33(2) PCT.

3. Erfinderische Tätigkeit - Art.33(3) PCT

D3 kann als nächstliegender Stand der Technik betrachtet werden. Die Aufgabe der Erfindung liegt darin, das Verfahren zur Herstellung von DNT zu vereinfachen, insbesondere die Verminderung der Zahl von eingesetzten Reaktoren und die Verringerung des Reaktionsvolumens. Als Lösung wird ein Verfahren bereitgestellt, in dem das Reaktionsgemisch am Ende der Stufe a) durch einen **Gehalt an Toluol von 3.5 bis 5 Gew.% bezogen auf die organische Phase**, einen Gehalt an Salpetersäure von 0.1 - 1.2 Gew.% bezogen auf die wäßrige Phase und die Phasentrennung in Schritt b) mittels dynamischem Separator charakterisiert wird (Anspruch 2).

Um eine kontrollierte Nitrierung durchzuführen wird allgemein im Stand der Technik versucht den Toluolgehalt auf der MNT-Stufe zu minimieren (siehe Beschreibung auf Seite 4, Zeilen 26-38 und **D3**: 0.5 Gew.%). Der beanspruchte Restgehalt an Toluol ist zum Zeitpunkt der Phasentrennung im MNT von 3.5 bis 5 Gew.%, Schritt b), höher als in **D3**. Es wurde durch Vergleichbeispiele bewiesen, daß die DNT-Herstellungsverfahren mit einer geringeren Reaktorzahl zu einem spezifikationsgerechten DNT trotz erhöhter Restgehalt an Toluol im MNT führen, ohne daß undefinierte Betriebszustände mit entsprechenden Sicherheitsrisiken auftreten (siehe Tabelle 1; Seite 10, Zeilen 18-32). Es gibt keinen Hinweis in **D1**, **D2** und/oder **D4**, der in Kombination mit **D3** zur vorgeschlagenen Lösung führen konnte. Der Gegenstand des Anspruchs 2 beruht auf einer erfinderischen Tätigkeit.

Die abhängigen Ansprüche 7 und 12-14 betreffen geringfügige bauliche Änderung der Stufen b), c) oder d) nach Anspruch 1, die im Rahmen dessen liegt, was ein Fachmann aufgrund der ihm geläufigen Überlegungen zu tun pflegt, zumal die damit erreichten Vorteile ohne weiteres abzusehen sind. Folglich liegt auch dem Gegenstand der Ansprüche 7 und 12-14 keine erfinderische Tätigkeit zugrunde.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Dinitrotoluol, im Gegenstrom, umfassend die Schritte
- 5
- a) Umsetzung von Toluol mit Salpetersäure in Anwesenheit von Schwefelsäure zu Mononitrotoluol,
- 10
- b) Trennung des Reaktionsprodukts aus Schritt a) in eine Mononitrotoluol enthaltende organische Phase und eine Schwefelsäure enthaltende wässrige Phase,
- 15
- c) Umsetzung der Mononitrotoluol enthaltenden organischen Phase mit Salpetersäure in Anwesenheit von Schwefelsäure zu Dinitrotoluol,
- 20
- d) Trennung des Reaktionsprodukts aus Schritt c) in eine Dinitrotoluol enthaltende organische Phase und eine Schwefelsäure enthaltende wässrige Phase,
- 25
- dadurch gekennzeichnet, dass das Reaktionsprodukt aus Schritt a) einen Gehalt an Toluol von 0,5 - 8 Gew.-%, bezogen auf die organische Phase, und einen Gehalt an Salpetersäure von 0,1 bis 1,2 Gew.-%, bezogen auf die wässrige Phase, aufweist und die Phasentrennung in Schritt b) mittels dynamischer Separatoren durchgeführt wird.
- 30
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das Reaktionsprodukt aus Schritt a) einen Gehalt an Toluol von 3,5 bis 5 Gew.-% bezogen auf das Gewicht der organischen Phase aus Schritt a), aufweist.
- 35
3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Mononitrotoluol enthaltende organische Phase aus Schritt b) ohne weitere Aufarbeitung in Schritt c) überführt wird.
- 40
4. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Schwefelsäure enthaltenden wässrigen Phasen aus den Schritten b) und d), gegebenenfalls nach einer Aufarbeitung und Aufkonzentration, wieder in Schritt a) und c) eingesetzt werden.
5. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass als Reaktionsapparate für die Schritte a) und c) Rührkessel und/oder Strömungsreaktoren eingesetzt werden.

2 Fig

13.

6. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass Schritt a) in nur einem Reaktionsapparat durchgeführt wird.
- 5 7. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass Schritt c) in maximal zwei in Reihe geschalteten Reaktionsapparaten durchgeführt wird.
8. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass Schritt a) bei einer Temperatur im Bereich zwischen 35 und 70°C durchgeführt wird.
- 10 9. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass Schritt c) bei einer Temperatur im Bereich zwischen 60 und 85°C durchgeführt wird.
10. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das Mol-Verhältnis von Salpetersäure zu Toluol in Stufe a) im Bereich zwischen 0,95 und 1,12 liegt.
- 15 11. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das Mol-Verhältnis von Salpetersäure zu Mononitrotoluol in Stufe c) im Bereich zwischen 1,03 und 1,10 liegt.
- 20 12. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Schwefelsäure enthaltende wässrige Phase aus Stufe b) zu einer Schwefelsäure mit einer Konzentration von 85 bis 96 % aufkonzentriert und in Stufe a) zurückgeführt wird.
- 25 13. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Schwefelsäure enthaltende wässrige Phase aus Stufe d) mit Salpetersäure versetzt und in Stufe a) zurückgeführt wird.
- 30 14. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die zugeführte Salpetersäure in Stufe a) und Stufe c) eine Konzentration von 58 bis 100 % aufweist.